

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-052721

(43)Date of publication of application : 23.02.2001

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01B 1/24

H01M 8/10

(21)Application number : 11-228333

(71)Applicant : OSAKA GAS CO LTD

(22)Date of filing : 12.08.1999

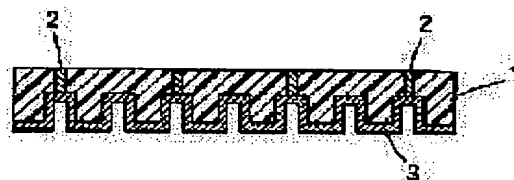
(72)Inventor : SAKAMOTO ARATA  
OKAZAKI HIROYUKI

## (54) SEPARATOR FOR FUEL CELL AND ITS MANUFACTURE

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a separator for a fuel cell having high conductivity, thermal conductivity, mechanical strength and dimensional accuracy of its groove by forming and molding without going through a carbonizing and graphitizing process and a cutting process.

SOLUTION: A separator for a fuel cell is obtained by applying injection-molding or compression-molding to a resin composition containing a conductive particle containing conductive coarse particles (graphite coarse particles and the like) having an average particle diameter (D50%) of 40-120  $\mu\text{m}$  and a non-carbonaceous resin such as a phenol resin without carbonizing and graphitizing it. The ratio of the non-carbonaceous resin is 25 w.% or less. The conductive coarse particle and a conductive fine particle (spherical graphite having a diameter of about 5-30  $\mu\text{m}$ , a natural graphite particle in a flake form and the like) having a small average particle diameter can be used for the conductive coarse particle by combining them at the ratio of the former/the latter = 100/0-40/60 (weight ratio). The separator may be composed of a molding 1 of the resin composition and a conductive materials 2, 3 integrated with the molding.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-52721

(P2001-52721A)

(43) 公開日 平成13年2月23日 (2001.2.23)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テ-マ-ト\* (参考)

H 0 1 M 8/02

H 0 1 M 8/02

B 5 G 3 0 1

H 0 1 B 1/24

H 0 1 B 1/24

B 5 H 0 2 6

H 0 1 M 8/10

H 0 1 M 8/10

審査請求 未請求 請求項の数19 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号

特願平11-228333

(22) 出願日

平成11年8月12日 (1999.8.12)

(71) 出願人 000000284

大阪瓦斯株式会社

大阪府大阪市中央区平野町四丁目1番2号

(72) 発明者 坂本 新

大阪市中央区平野町四丁目1番2号 大阪  
瓦斯株式会社内

(72) 発明者 岡崎 博行

大阪市中央区平野町四丁目1番2号 大阪  
瓦斯株式会社内

(74) 代理人 100090686

弁理士 鎌田 充生

Fターム(参考) 5G301 BA02 CD10 DA19

5H026 AA06 BB00 BB01 BB02 BB04

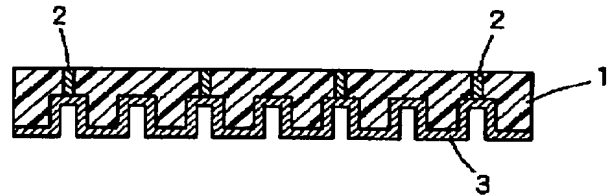
EE06 EE18 HH00 HH01 HH05

(54) 【発明の名称】 燃料電池用セパレータおよびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 炭化及び黒鉛化工程並びに切削工程を経ることなく、成形・賦型により、導電性、熱伝導性、機械強度、溝の寸法精度の高い燃料電池用セパレータを得る。

【解決手段】 平均粒子径 (D50%) 40~120  $\mu$ m の導電性粗粒子 (黒鉛粗粒子など) を含む導電性粒子と、フェノール樹脂などの非炭素質樹脂とを含む樹脂組成物を射出成形又は圧縮成形し、炭化及び黒鉛化することなく、燃料電池用セパレータを得る。非炭素質樹脂の割合は25重量%以下である。前記導電性粒子は、前記導電性粗粒子は、平均粒子径の小さな導電性細粒子 (5~30  $\mu$ m 程度の球状黒鉛、薄片状天然黒鉛粒子など) とを、前者/後者=100/0~40/60 (重量比) の割合で組み合わせて使用できる。セパレータは、前記樹脂組成物の成形体1と、この成形体と一体化した導電材2、3とで構成してもよい。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 黒鉛粒子と、熱硬化性樹脂および熱可塑性樹脂から選択された少なくとも一種の非炭素質樹脂とで構成された燃料電池用セパレータであって、前記黒鉛粒子が、少なくとも平均粒子径 (D50%) 40~120  $\mu\text{m}$  の黒鉛粗粒子を含む燃料電池用セパレータ。

【請求項 2】 黒鉛粗粒子が非球形の無定形粒子である請求項 1 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 3】 黒鉛粗粒子の粒度分布の均斉度 (D80%/D20%) が 5.0 以下である請求項 1 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 4】 黒鉛粒子が、平均粒子径 (D50%) 40~120  $\mu\text{m}$  の黒鉛粗粒子と、この黒鉛粗粒子よりも平均粒子径の小さな黒鉛細粒子とを、前者/後者=100/0~40/60 (重量比) の割合で含む請求項 1 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 5】 黒鉛粗粒子の平均粒子径を D1 とするとき、黒鉛細粒子の平均粒子径 (D50%) D2 が、 $D2 = D1 \times 0.05 \sim D1 \times 0.5$  である請求項 4 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 6】 黒鉛細粒子が、球状黒鉛および薄片状天然黒鉛粒子から選択された少なくとも一種である請求項 4 又は 5 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 7】 非炭素質樹脂の含有量が、黒鉛粒子および非炭素質樹脂の総量に対して 25 重量%以下である請求項 1 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 8】 熱硬化性樹脂がフェノール樹脂である請求項 1 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 9】 フェノール樹脂が、(i) メチレン基、メチロール基、並びに 3 官能性のフェノール類残基を主たる結合単位として含有しており、(ii) KBr 錠剤法による赤外線吸収スペクトルにおいて、波数 1600  $\text{cm}^{-1}$  での吸収強度を D1600 とし、波数 990~1015  $\text{cm}^{-1}$  での最大吸収強度を D990-1015 とし、波数 890  $\text{cm}^{-1}$  での吸収強度を D890 としたとき、 $D990-1015/D1600 = 0.2 \sim 9.0$ 、 $D890/D1600 = 0.09 \sim 1.0$  であり、(iii) 液体クロマトグラフィーによる遊離フェノール含有量が 50~500 ppm である請求項 8 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 10】 さらに炭素繊維を含む請求項 1~9 のいずれかの項に記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 11】 請求項 1~10 に記載の成分を含む組成物の成形体と、この成形体と一体化した導電材とで構成されている燃料電池用セパレータ。

【請求項 12】 成形体の少なくとも片面が、導電材で被覆されている請求項 11 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 13】 成形体の少なくとも片面又は内部に導電材を有する請求項 11 又は 12 記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 14】 導電性粒子と、熱硬化性樹脂および熱可塑性樹脂から選択された少なくとも一種の非炭素質樹脂とで構成されたプレートであって、導電性粒子が、平均粒子径 (D50%) 40~120  $\mu\text{m}$  の粗粒子 40~100 重量%と、この粗粒子の粒子間に充填可能な微粒子 0~60%とで構成され、かつ前記導電性粒子と前記非炭素質樹脂との割合が、前者/後者=95/5~75/25 (重量比) である導電性プレート。

【請求項 15】 請求項 1 記載の黒鉛粒子と、熱硬化性樹脂および熱可塑性樹脂から選択された少なくとも一種の非炭素質樹脂とを含む組成物を射出成形又は圧縮成形し、請求項 1~9 のいずれかの項に記載の燃料電池用セパレータを製造する方法。

【請求項 16】 成形体と導電材とを一体化する請求項 15 に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 17】 金型のうち成形体の少なくとも片面に対応する部位に導電性シートを配設する工程と、請求項 15 記載の組成物を入れて加圧する工程とで構成されている請求項 16 記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 18】 金型のうち成形体の少なくとも片面に対応する部位に導電性樹脂組成物を塗布する工程と、請求項 15 記載の組成物を入れて加圧する工程とで構成されている請求項 16 記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 19】 金型のうち成形体の少なくとも片面又は内部に対応する部位に導電材を予めセットする工程と、請求項 15 記載の組成物を充填し、前記導電材と一体化する工程とで構成されている請求項 16 記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、燃料電池 (特に固体高分子型燃料電池、PEFC と称する) におけるセパレータおよびその製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 燃料電池、例えば、固体高分子型燃料電池は、固体高分子膜 (デュボン社のナフィオン膜やダウケミカル社のダウ膜など) を電解質膜として用い、この電解質膜の両側に、厚み 0.1~0.3 mm 程度のポーラスな黒鉛質ペーパーを設け、このペーパーの表面に電極触媒として白金合金触媒を担持させている。また、前記黒鉛質ペーパーの外側には、ガス流路である溝が形成された厚み 1~3 mm 程度の多孔質黒鉛板と、厚み 0.5 mm 程度の緻密質炭素板である平板セパレータとを順次配設してセルを構成したり、ガス流路である溝が形成された厚み 1~3 mm 程度の緻密質炭素板であるセパレータを配設してセルを構成している。

【0003】 前記平板セパレータには、酸素、水素に対するガス不透過性、電気導電性、熱伝導性、機械強度、耐酸性

などが要求される。また、溝付きセパレータには、平板セパレータに対する要求性能に加えて、ガス流路の寸法精度が高いことが要求される。

【0004】このようなセパレータとしては、フェノール樹脂等の樹脂単独及び炭素粉末との混練物を平板に成形した後、非酸化性雰囲気中で炭化又は黒鉛化処理することにより全体が炭素質又は黒鉛質の平板を形成し、さらに切削加工により、平板の表面に溝を形成することにより製造されている。また、フェノール樹脂に代えて、炭化収率の高い石油又は石炭系ピッチをバインダーとして用いて同様に製造されている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかし、セパレータにはガス不透過性に加え、厚み方向の高い導電性(例えば、 $10^{-1} \sim 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ 程度の導電性)が要求される。そのため、前述のように、フェノール樹脂やピッチと黒鉛粉末の成形板を炭化することにより、フェノール樹脂やピッチの導電性の低さを解消する必要がある。すなわち、セパレータの製造には炭化工程が必要であり、未焼成(すなわち非炭素質)の樹脂を含む成形体では、とうてい燃料電池セパレータに必要な導電性には達し得ない。

【0006】そこで、常法としては、成形板を不活性雰囲気中で焼成、炭化させ、更に $2000^{\circ}\text{C}$ 以上の温度で熱処理することにより黒鉛化処理を施し、全体が炭素質の板を得ている。

【0007】しかし、この工程は、重縮合反応を伴う炭化後の板の反りや割れなどにより歩留まりが低下すること、平板セパレータおよび溝付きセパレータのいずれも切削加工が必要なことなどの理由から、非常にコスト高となる。さらに、炭化工程により、ガスに対する不透過性が損なわれるため、更に樹脂の含浸が必要となる。

【0008】従って、本発明の目的は、炭化工程を必要とすることなく、ガス不透過性、電気導電性、熱伝導性、機械強度、耐酸性などの諸特性に優れる燃料電池用セパレータ(特に固体高分子型燃料電池用セパレータ)およびその製造方法を提供することにある。

【0009】本発明の他の目的は、炭化・黒鉛化工程および切削工程を経ることなく、成形・賦型工程を経るだけで、高い導電性、熱伝導性などの特性に加えて、寸法精度の高い溝(ガス流路)を形成できる燃料電池用セパレータ(特に固体高分子型燃料電池用セパレータ)の製造方法を提供することにある。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、前記目的を達成するため鋭意検討の結果、非炭素質の樹脂と特定の黒鉛粒子の組み合わせた組成物で平板を構成したり、更に前記組成物に金属質の導電材とを組み合わせて成形すると、炭化・黒鉛化工程および切削工程を経ることなく、性能の高いセパレータが得られることを見だし、本発明を完成した。

【0011】すなわち、本発明の特色は、導電性粒子と、熱硬化性樹脂および熱可塑性樹脂から選択された少なくとも一種の非炭素質樹脂とで構成された導電性プレートであって、導電性粒子を、少なくとも平均粒子径(D50%) $40 \sim 120 \mu\text{m}$ の粗粒子で構成する点にある。導電性粒子は、前記粗粒子と、この粗粒子の粒子間の空隙に充填可能な微粒子とを組み合わせで構成してもよく、前記粗粒子と細粒子との割合は、例えば、前者/後者 $=40/60 \sim 100/0$ (重量比)程度である。前記非炭素質樹脂の割合は、前記導電性粒子および前記非炭素質樹脂の総量に対して25重量%以下であり、前記導電性粒子と前記非炭素質樹脂との割合は、例えば、前者/後者 $=95/5 \sim 75/25$ (重量比)程度の範囲から選択できる。前記導電性プレートは燃料電池用セパレータなどとして有用である。より具体的には、本発明の燃料電池用セパレータ(a)は、少なくとも平均粒子径(D50%) $40 \sim 120 \mu\text{m}$ の黒鉛粗粒子と、非炭素質樹脂とを必須成分とする組成物、必要によりさらに前記黒鉛粗粒子よりも平均粒子径が小さく、黒鉛粗粒子間を充填可能な黒鉛細粒子を含む組成物で形成されていることを特色とする。さらに本発明の燃料電池用セパレータ(b)には、前記組成物の成形体と、この成形体と一体化した導電材とで構成されている燃料電池用セパレータ(すなわち前記セパレータを形成する組成物と導電材(金属系導電材など)とが一体成形されたセパレータ)が含まれる。

【0012】前記セパレータ(a)は、前記組成物を射出成形又は圧縮成形することにより製造でき、前記セパレータ(b)は、成形体と導電材とを一体化すること、例えば、成形により組成物と導電材とを一体化することにより製造できる。

【0013】なお、本明細書において、「黒鉛粒子」とは黒鉛質又は炭素質粒子を意味し、高い導電性を有する限り黒鉛構造を有する必要はないが、高い結晶性の黒鉛構造を有するのが好ましい。また、「非炭素質樹脂」とは、熱硬化性樹脂や熱可塑性樹脂から選択された樹脂を意味し、例えば、 $700^{\circ}\text{C}$ 以下(特に $500^{\circ}\text{C}$ 以下)の温度での成形履歴を受けた非炭素質樹脂が含まれ、 $700^{\circ}\text{C}$ 以上(特に $500^{\circ}\text{C}$ 以上)の温度で焼成した炭化又は黒鉛化樹脂は含まれない。

【0014】また、粉体粒子群の粒度分布は、レーザー光回折法によって容易に測定でき、得られる累積粒度分布曲線より累積度20%、50%、80%点での粒子径を得ることができる。ここで、累積度50%の粒径を記号D50%で表し、平均粒子径と称す。また、粒度分布の広がり、累積度20%粒度(D20%)と、累積度80%粒度(D80%)との比で表すことができ、前記比(D80%/D20%)を均斉度と呼ぶ。この均斉度の数値が大きいと、大粒径から小粒径までさまざまな粒子からなるブロードな粒度特性であることを示し、この

数値が小さいと、粒径が揃った粒度特性であることを示す。

【0015】なお、以下の説明において、導電性プレート又は燃料電池用セパレータを、単にプレート又はセパレータと総称する場合がある。

【0016】

【発明の実施の形態】本発明のプレート又はセパレータ（特に固体高分子型燃料電池用セパレータなど）は、炭化又は黒鉛化工程を経ることなく、非炭素質の樹脂を含むにも拘わらず、厚み方向の体積抵抗が小さく、曲げ強度が高いという特色がある。プレート又はセパレータの厚さ方向の体積抵抗は0.001~0.05Ωcm、好ましくは0.001~0.03Ωcm（例えば、0.001~0.025Ωcm）程度である。セパレータの厚み方向の熱伝導率は2~60W/mK、好ましくは3~60W/mK、さらに好ましくは5~60W/mK程度であつてもよい。

【0017】セパレータの見掛け密度は、例えば、1.7~2.1g/cm<sup>3</sup>、好ましくは1.8~2.1g/cm<sup>3</sup>（例えば、1.8~2.2g/cm<sup>3</sup>）である。

【0018】さらに、セパレータの曲げ強度は、3~20kgf/mm<sup>2</sup>、好ましくは5~20kgf/mm<sup>2</sup>程度であり、セパレータの厚みは、例えば、0.5~3mm、好ましくは0.8~2.5mm程度である。

【0019】燃料電池用セパレータ（a）及び（b）は、未焼成（未炭化および未黒鉛化）であり、熱硬化性樹脂および熱可塑性樹脂から選択された少なくとも一種の樹脂（バインダー）である非炭素質樹脂で構成される。

【0020】〔非炭素質樹脂〕熱硬化性樹脂としては、例えば、フェノール樹脂、コブナ樹脂（芳香族アルデヒドと芳香族化合物との反応により得られる樹脂）、フラン樹脂、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、アミノ樹脂（メラミン樹脂、尿素樹脂など）などが例示できる。これらの熱硬化性樹脂は単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。

【0021】これらの熱硬化性樹脂のうち、フェノール樹脂は、耐熱性、耐酸性、強度、耐熱水性、コストの点で優れている。フェノール樹脂には、通常のレゾール樹脂、ノボラック樹脂、フェノール類とアルデヒド類との特定の反応により生成するフェノール樹脂、及びフェノール類とアルデヒド類と含窒素化合物との反応により生成するフェノール樹脂（共重合フェノール樹脂）も含まれる。

【0022】上記のフェノール類とアルデヒド類との特定の反応により得られるフェノール樹脂およびその製造方法は、特公昭62-30211号公報に開示されており、（1）塩酸（HCl）濃度5~28重量%、ホルムアルデヒド（HCHO）濃度3~25重量%であり、かつ塩酸とホルムアルデヒドの合計濃度15~40重量%である塩酸-ホルムアルデヒド浴に、（2）フェノール類を特定の割合に維持して接触させ、（3）この接触によりフェノール類の白濁を生成させ、その後、粒状ない

し粉末状の固形物を形成するように前記接触を行い、この接触の間、反応系内の温度を45℃以下に維持することにより粒状ないし粉末状樹脂を得ることができる。樹脂の固形物は反応混合液から分離し、水洗し、アルカリ水溶液（アルカリ金属水酸化物、アンモニアなどの塩基を含有する水溶液）で中和してもよい。

【0023】前記フェノール類には、フェノール、メタクレゾール、他のフェノール類（o-クレゾール、m-クレゾール、p-クレゾール、ビスフェノールA、o-, m-又はp-C<sub>2-4</sub>アルキルフェノール、p-フェニルフェノール、キシレノール、ハイドロキノン、レゾルシンなど）などが含まれる。

【0024】得られたフェノール樹脂は、（1）実質的に炭素、水素及び酸素原子で構成されており、（2）メチレン基、メチロール基、並びに3官能性のフェノール類残基を主たる結合単位として含有しており、3官能性のフェノール類残基は、2, 4および6-位の一箇所でメチレン基と結合し、少なくとも他の1箇所でメチレン基及び/又はメチロール基と結合している。また、

（3）KBr錠剤法による赤外線吸収スペクトルにおいて、波数1600cm<sup>-1</sup>（ベンゼンに帰属する吸収ピーク）での吸収強度をD<sub>1600</sub>とし、波数990~1015cm<sup>-1</sup>（メチロール基に帰属する吸収ピーク）での最大吸収強度をD<sub>990-1015</sub>、波数890cm<sup>-1</sup>（ベンゼン核の孤立水素原子の吸収ピーク）での吸収強度をD<sub>890</sub>としたとき、D<sub>990-1015</sub>/D<sub>1600</sub>=0.2~9.0（好ましくは0.2~5、さらに好ましくは0.3~4）程度、D<sub>890</sub>/D<sub>1600</sub>=0.09~1.0（好ましくは0.1~0.9、さらに好ましくは0.12~0.8）程度である。

【0025】さらに、前記粉粒状のフェノール樹脂は、（A）粒径0.1~150μmの球状一次粒子および二次凝集物を含有し、（B）少なくとも全体の50重量%が100タイラーメッシュ篩を通過可能な大きさであり、（C）液体クロマトグラフィーによる遊離フェノール含有量は、通常、50~500ppm（好ましくは400ppm以下、さらに好ましくは300ppm以下）である。

【0026】前記樹脂のメタノールに対する溶解度は、20重量%以上（好ましくは30重量%以上、さらに好ましくは40重量%以上）である。

【0027】熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリオレフィン系樹脂（ポリプロピレン樹脂、エチレン-プロピレン共重合体など）、ポリエステル系樹脂（ポリアルキレンテレフタレート、ポリアルキレンナフタレート又はこれらのコポリエステル、ポリアリレートなど）、ポリカーボネート樹脂（ビスフェノールA型ポリカーボネート樹脂など）、ポリスチレン系樹脂（スチレンなどのスチレン系単量体の単独又は共重合体など）、アクリル系樹脂（メタクリル酸メチルなどの（メタ）アクリル系単

量体の単独又は共重合体など)、ポリアミド樹脂(ポリアミド6、ポリアミド66、ポリアミド610など)、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリフェニレンスルフィド樹脂、ポリエーテルエーテルケトン樹脂、ポリスルホン系樹脂(ポリスルホン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂など)などが例示できる。これらの熱可塑性樹脂も単独で又は二種以上組合わせて使用できる。

【0028】〔導電性粒子〕導電性粒子は、少なくとも粗粒子を含んでおり、粗粒子の平均粒子径(D50%)は、例えば、40~150 $\mu$ m(例えば、50~125 $\mu$ m)、好ましくは50~150 $\mu$ m(例えば、50~125 $\mu$ m)程度であり、通常、40~120 $\mu$ m(例えば、50~120 $\mu$ m)程度である。このような導電性粗粒子は、プレート又はセパレータにおいて導電骨格を形成し、導電に寄与する実効断面積を増加できるとともに、比表面積が小さいため樹脂量を大きく低減しても、ガス透過性が小さく、一体性及び機械的強度の高いプレート又はセパレータを形成できる。

【0029】このような導電性粗粒子は、種々の導電性粒子、例えば、金属、非金属の粒子から選択できる。好ましい導電性粗粒子は、黒鉛粒子、例えば、天然黒鉛、人造黒鉛から選択できる。前記黒鉛粒子は、通常、ブタノール置換真比重が2.1以上(例えば、2.1~2.3程度)であり、石油系又は石炭系の針状コークスを素原料とした黒鉛粒子などが例示できる。導電性粗粒子(特に黒鉛粒子)のBET比表面積は、通常、10m<sup>2</sup>/g以下(例えば、1~5m<sup>2</sup>/g)、好ましくは2~5m<sup>2</sup>/g程度である。また、JIS K 6221に規定するA法(ジブチルフタレート(DBP)を使用)による吸油量は、例えば、60~75cc/100g程度である。

【0030】導電性粗粒子(黒鉛粗粒子など)の形状は特に制限されないが、通常、非球形であり、無定形粒子である。特に黒鉛粒子などの導電性粗粒子は、通常、扁平で断面形状が無定形の形状を有している。導電性粗粒子(特に黒鉛粗粒子)の粒度分布の均斉度(D80%/D20%)は、例えば、5以下(すなわち1~5程度)の範囲から選択でき、通常、1.5~5、好ましくは2~5、特に2.2~4.8程度である。

【0031】前記導電性粗粒子は、導電性細粒子と組み合わせて使用できる。導電性細粒子は、導電性粗粒子よりも平均粒子径が小さく、導電性粗粒子間の空隙に充填可能であれば、種々の導電性粒子が使用できる。充填された粗粒子間の空隙を細粒子が埋めることにより、導電性を大きく向上できる。

【0032】前記導電性粗粒子の平均粒子径をD1とするとき、導電性微粒子の平均粒子径(D50%)D2は、D2=D1 $\times$ 0.001~D1 $\times$ 0.6程度の範囲から選択でき、通常、D1 $\times$ 0.01~D1 $\times$ 0.5、好ましくはD1 $\times$ 0.02~D1 $\times$ 0.5、特にD1 $\times$

0.05~D1 $\times$ 0.5程度である。

【0033】導電性を付与するため、細粒子の平均粒子径(D50%)は、粗粒子の平均粒子径に応じて、例えば、0.1~50 $\mu$ m程度の範囲から選択でき、通常、1~50 $\mu$ m、好ましくは5~40 $\mu$ m、さらに好ましくは5~30 $\mu$ m(例えば、10~25 $\mu$ m)程度である。

【0034】導電性細粒子としては、粗粒子と同様、金属粒子、非金属粒子から選択できるが、通常、天然黒鉛、人造黒鉛などの黒鉛粒子から選択できる。細粒子の形状は特に制限されず、例えば、球形、楕円形、方形などの多角形状の他、鱗片又は薄片状などの板状、ロッド状、無定形状などであってもよい。これらの導電性細粒子のうち充填性や成形時の潤滑性を付与するためには、球状粒子(球状黒鉛)および薄片状粒子(薄片状天然黒鉛粒子又は黒鉛粉)から選択された少なくとも一種が好適に使用できる。球状の導電性細粒子は、粗粒子間の空隙に対する充填性が高いので、効率よく導電性を向上できる。また、薄片状粒子は、球状細粒子と同じく粗粒子間の空隙に対する充填性が高く、導電骨格として機能する導電性粗粒子と面接触するので、効率よく導電性を向上できる。

【0035】球状黒鉛粒子には、メソカーボンマイクロビーズ(以下、単にMCMBという)の黒鉛化品、球状化された天然及び人造黒鉛、フリードコークス、ギルソナイトコークスなどが含まれる。これらの球状黒鉛粒子のうち、MCMBは、高度に結晶が配向し、黒鉛類似の構造を有する球状体(メソフェーズ小球体)である。MCMBの平均粒径は、通常、5~50 $\mu$ m、好ましくは10~40 $\mu$ m、特に10~25 $\mu$ m程度である。MCMBは、コールタール、コールタールピッチ、重質油などの歴肯物を300~500 $^{\circ}$ C程度で加熱することにより生成する。このようなMCMBの製造方法は、例えば、特公平1-27968号公報、特開平1-242691号公報などに記載されている。MCMBの黒鉛化品とは、通常の方法でMCMBを黒鉛化したものである。

【0036】薄片状天然黒鉛粒子(又は薄片状天然黒鉛粉)は、高結晶性天然黒鉛を公知の方法で(例えば硫酸を用いて)膨張処理し、ジェットミルなどにより粉碎した粉粒体である。膨張処理によって黒鉛結晶の積層構造が層間で剥離した生成物を粉碎することにより、非常に平面的な黒鉛粉末(鱗片又は薄片状粉末)が得られる。このような粉末は加圧によって容易に圧縮可能であり、充填性を改善することができる。薄片状天然黒鉛粒子の平均粒子径は、粉碎操作により任意に調整できる。

【0037】導電性粗粒子と導電性細粒子(特に黒鉛粒子)との組み合わせにより、成形時に黒鉛粒子の高密度充填が可能となり、プレートやセパレータに高い導電性を有効に付与できる。更に、自己潤滑性の高い黒鉛細粒子の添加により成形時の内部応力が緩和され、応力ひず

みが残存しにくくなり、プレートやセパレータに反りや変形が生じるのを防止できる。

【0038】導電性粗粒子と導電性細粒子との割合は、高い導電性を付与できる範囲、例えば、前者／後者（重量比）＝100／0～40／60、好ましくは100／0～50／50（例えば、100／0～60／40）程度である。

【0039】なお、導電性粒子と非炭素質樹脂との総量を基準にして、前記導電性粗粒子の含有量は、通常、50～95重量％（好ましくは55～90重量％、特に60～90重量％）、導電性細粒子の含有量は、0～40％（好ましくは0～35重量％）程度である。

【0040】前記導電性粒子が少なくとも粗粒子を含むため、導電性粒子の比表面積や吸油量を低減できる。そのため、非炭素質樹脂の含有量が少なくとも、一体性、機械的強度の高いプレート（セパレータなど）を得ることができるとともに、炭化又は黒鉛化工程を経ることなく、高い導電性及び熱伝導性のプレート（セパレータなど）を得ることができる。

【0041】非炭素質樹脂の含有量は、通常、黒鉛粒子および非炭素質樹脂の総量に対して25重量％以下（好ましくは5～25重量％程度）である。より具体的には、前記導電性粒子と前記非炭素質樹脂との割合は、通常、前者／後者＝95／5～75／25（重量比）、好ましくは90／10～80／20（重量比）程度である。このような組成割合では、導電性、機械的強度や熱伝導性などのプレート（セパレータ）の物性を向上できる。

【0042】上記組成物（樹脂複合材料）は、さらに炭素繊維を含んでいてもよい。炭素繊維の種類は制限されず、石油系又は石炭系のピッチ系炭素繊維、PAN（ポリアクリロニトリル）系炭素繊維、レーヨン系炭素繊維、フェノール樹脂系炭素繊維などが使用できる。炭素繊維の平均繊維径は、例えば、0.5～50μm、好ましくは1～30μm、さらに好ましくは5～20μmの範囲から選択できる。炭素繊維の平均繊維長は、適当に選択でき、例えば、10μm～5mm、好ましくは20μm～3mm程度である。炭素繊維の使用量は、セパレータを構成する複合材全体の1～10重量％程度の範囲から選択できる。炭素繊維の含有量が10重量％を超えると気密性が低下し、ガス透過率が大きくなる。

【0043】さらに、非炭素質樹脂の導電性を改善するため、必要に応じ導電性カーボンブラック（ファーンズブラック、アセチレンブラック、ケッチェンブラックなど）、コロイダル黒鉛などの導電性微粒子を含有させてもよい。

【0044】さらには、前記成分で構成された組成物（樹脂複合材料）には、必要に応じて、カップリング剤、離型剤、滑剤、可塑剤、硬化剤、硬化助剤、安定剤などを適宜配合してもよい。

【0045】このようなプレート（セパレータ）（a）は、合成樹脂に対する慣用の成形法、例えば、射出成形又は圧縮成形により製造できる。射出成形では、前記樹脂、導電性粒子（黒鉛粒子など）、および必要により炭素繊維で構成された複合材成分（樹脂組成物）を熔融混練し（必要によりペレットを調製して熔融混練し）、所定の金型に射出成形することにより平板状プレート（平板状セパレータ）を製造できる。熱硬化性樹脂を用いる場合、圧縮成形では、例えば、圧力20～1000kg/cm<sup>2</sup>、温度100～300℃程度で、前記複合材成分（樹脂組成物）を金型内で加熱して加圧成形することにより平板状プレート（平板状セパレータ）を製造できる。

【0046】導電性プレート又は燃料電池用セパレータ（b）は、前記成分を含む樹脂組成物の成形体と、この成形体と一体化した導電材とで構成されている。この成形体は、前記プレート又はセパレータ（a）と同様に、樹脂、導電性粒子（黒鉛粒子など）、および必要により炭素繊維などで構成された組成物で形成してもよい。

【0047】前記プレート又はセパレータ（b）において、導電材の種類や形態は特に制限されず、被膜（導電性塗膜など）、繊維状導電材（金属繊維、炭素繊維などの導電性繊維やこれらのストランドなど）、薄膜状導電材（導電性フィルムやシート、金属箔など）、プレート状導電材（金属板など）、棒状導電性部材（金属ロッドやピンなど）などであってもよい。導電材の体積抵抗は、例えば、10<sup>-5</sup>～10<sup>-2</sup>Ωcm程度であってもよい。導電材としては、金属、例えば、アルミニウム、銅、金、銀、白金などが挙げられる。

【0048】前記セパレータ（b）には、種々の態様、例えば、（b-1）前記樹脂組成物による成形体の少なくとも片面が、導電材で被覆されている燃料電池用セパレータ、（b-2）前記樹脂組成物による成形体の少なくとも片面又は内部に、密着又は埋設した導電材を有する燃料電池用セパレータなどが含まれる。前者のセパレータ（b-1）では、導電材は導電性被膜や薄膜状導電材である場合が多く、後者のセパレータ（b-2）では、導電材は平板状導電材や棒状導電材である場合が多く、導電材は少なくとも部分的に成形体に埋設してもよい。

【0049】本発明の方法において、前記燃料電池用セパレータ（b）は、成形により前記樹脂組成物の成形体と導電材とを一体化することにより製造できる。より具体的には、キャビティを有する平板状金型（雌型）と、前記キャビティに対応する凸部（コア）とを備えた圧縮成形機を用いて成形する際、金型のうち成形体の少なくとも片面（片面又は両面）に対応する部位に導電材（導電性シートなど）を配設する工程と、前記樹脂組成物を金型に入れて加圧する工程とを経ることにより、少なくとも片面が導電材で被覆されたセパレータ又は少なくとも片面に導電材が密着して一体化したセパレータを製造でき

る。導電材は金型に対して剥離可能に配設すればよく、必要により接着剤を用いて配設(又は密着)してもよい。また、導電材は、金型のキャビティ側及び/又はコア側に配設できる。

【0050】また、導電材の配設に代えて、金型のうち成形体の少なくとも片面(片面又は両面)に対応する部位に導電材(導電性樹脂組成物など)を塗布する工程を採用し、キャビティに前記樹脂組成物を入れて加圧する工程を経ることにより燃料電池用セパレータを製造することもできる。導電性樹脂組成物は導電性塗料などの形態であつてもよく、金型のキャビティ側及び/又はコア側に剥離可能に塗布してもよい。

【0051】さらに、金型のうち成形体の少なくとも片面又は内部に対応する部位に導電材(金属薄板など)を予めセットする工程と、キャビティに前記樹脂組成物を充填し、導電材(金属薄板など)と一体化する工程とを経ることにより、導電材が成形体の片面又は内部で一体化した燃料電池用セパレータを製造できる。

【0052】これらの方法では、セパレータ自体の導電性が不足している場合でも、触媒を担持したポーラスな黒鉛質ペーパーに接触するセパレータ面側又はその反対面を含めた両面のみを高導電化することにより、触媒相での電子の授受をポーラスな黒鉛質ペーパーを通じてセパレータ面でスムーズに行なうことができる。

【0053】加圧成形は、樹脂の種類などに応じて、慣用の方法、例えば、熱硬化性樹脂を用いる場合、圧力20~1000kg/cm<sup>2</sup>、温度100~300℃程度で行うことができる。また、加圧成形には、圧縮成形法、トランスファ成形法、インサート成形法も採用できる。

【0054】さらに、セパレータの厚み方向の導電性を高めるため、金型のキャビティ側及びコア側の少なくとも一方(通常、キャビティ側)に導電材を配してキャビティに樹脂組成物を入れ、金型のキャビティ側及びコア側の一方(通常、コア側)に、導電性インサート(インサートピン、インサート板など)を他方(通常、キャビティ側)に向けて配して加圧成形し、導電性インサートをセパレータの厚み方向に埋設してもよい。

【0055】図1は、本発明の燃料電池用セパレータの一例を示す概略断面図である。この例では、燃料電池用セパレータは、断面凹凸状の導電性金属箔3と、この導電性金属箔の複数の凹部に所定間隔をおいて起立した導電性インサートピン2とを備えており、導電性金属箔3及び導電性インサートピン2は、少なくとも前記導電性粒子及び非炭素質樹脂とを含む導電性樹脂組成物の成形体1と一体化している。導電性インサートピン2の一方の端面は導電性金属箔3と導通しているとともに、他方の端面は成形体1の平坦面で露呈している。このような燃料電池用セパレータは、金型のコア側の凹凸溝に沿わせて導電性金属箔(アルミニウム箔、白金箔など)3を

断面凹凸状に仮止めし、複数の導電性インサートピン(アルミニウム製インサートピンなど)2を金型のコア側の複数の凸部に所定間隔をおいて起立させて挿入し、導電性樹脂組成物1を金型に入れて成形することにより得ることができる。成形は、金型のキャビティ側又はコア側のいずれか一方に導電性金属箔(アルミニウム箔、白金箔など)3が存在する状態で導電性樹脂組成物1を充填した後、加圧成形することにより行うことができる。導電性インサートピン(アルミニウム製インサートピン)2は、厚み方向の導電性を付与するため、導電性金属箔3に接触してセパレータの厚み方向に挿入することができる。

【0056】図2は、本発明の燃料電池用セパレータの他の例を示す概略断面図である。この燃料電池用セパレータは、前記図1に示すセパレータにおいて、断面凹凸状の導電性金属箔3と反対側の面に、シート状の導電性金属箔3が位置し、導電性インサートピン2の両端面は、両面の導電性金属箔3と接触しており、両面の導電性金属箔3及び導電性インサートピン2は、成形体1と一体化している。このような燃料電池用セパレータは、金型のコア側およびキャビティ側に、それぞれ、断面凹凸状の導電性金属箔とシート状の導電性金属箔(アルミニウム箔、白金箔など)3を固定し、アルミニウム製インサートピン2をコアの凸部に挿入し、導電性樹脂組成物1を入れて成形することにより得ることができる。導電性金属箔3は成形に伴ってセパレータの両面に一体化できる。

【0057】図3は、本発明の燃料電池用セパレータのさらに他の例を示す概略断面図である。この燃料電池用セパレータは、一方の面に凹凸溝が形成された板状の成形体1と、この成形体の凹凸面に形成された導電性塗料4と、この導電性塗料と接触して厚み方向に延びる導電性インサートピン2とで構成されており、成形体1と導電性塗料4と導電性インサートピン2は一体化している。また、導電性インサートピン2は成形体1の隣接する凹溝にそれぞれ配されている。導電性インサートピン2の一方の端面は、導電性塗料4と接触して成形体1の隣接する凹溝の底部に配され、インサートピンの2の端面は、成形体1の平坦面で露呈している。このような燃料電池用セパレータは、金型のコア側に、刷毛塗りなどの方法で導電性塗料(藤倉化成(株)製、商品名ドータイトなど)4を剥離可能に塗布し、複数の導電性インサートピン(アルミニウム製インサートピン)2を厚み方向に挿入し、導電性樹脂組成物1を入れて成形することにより得ることができる。なお、成形は、コアの凹凸溝に沿わせて導電性金属箔を固定することに代えて、コアの凹凸溝に導電性塗料を塗布する以外、図1の燃料電池用セパレータと同様にして得ることができる。また、金型内に導電性インサートピン2を起立させて、一方の面に凹凸溝を有する成形体1を成形し、得られた成形体1

の凹凸面に導電性塗料4を塗布することにより、前記構造の燃料電池用セパレータを得ることもできる。

【0058】図4は、本発明の燃料電池用セパレータの別の例を示す概略断面図である。この燃料電池用セパレータは、図3に示す燃料電池用セパレータにおいて、一方の面に凹凸溝を有する成形体1と、この成形体の両面に形成された導電性塗料4と、両面の導電性塗料と接触し、かつ軸が厚み方向に延びる導電性インサートピン2とを備えている。このような両面に導電性が付与された燃料電池用セパレータは、金型のキャビティ側及びコア側に、導電性塗料（ドータイトなど）4を剥離可能に塗布し、複数の導電性インサートピンを金型内で起立させて挿入し、導電性樹脂組成物1を入れて成形する方法、金型内に導電性インサートピン2を起立させて、一方の面に凹凸溝を有する成形体1を成形し、得られた成形体1の両面に導電性塗料4を塗布する方法により得ることができる。

【0059】図5は、本発明の燃料電池用セパレータのさらに別の例を示す概略断面図である。この燃料電池用セパレータは、一方の面に凹凸溝が形成された成形体1と、この成形体の平坦面に一体化した導電性板材（アルミニウム板など）5とで構成されている。このような構造のセパレータは、金型のキャビティ側に導電性板材（アルミニウム板など）5を仮止めし、金型内に導電性樹脂組成物1を入れて、成形することにより得ることができる。成形は、金型に導電性板材5を配して、導電性樹脂組成物1を金型内に充填し、加圧成形することにより行うことができる。

【0060】図6は、本発明の燃料電池用セパレータの他の例を示す概略断面図である。このセパレータは、厚み方向の導電性を高めるため、導電性成形体1の導電性板材5と接触して導電性インサートピン2が他方の凹凸面に厚み方向に延びている点を除いて、図5に示すセパレータと同様の構造を有している。このような構造のセパレータは、金型のキャビティ側に導電性板材（アルミニウム板など）5を仮止めし、コア側の凸部に複数の導電性インサートピン（アルミニウム製インサートピンなど）2を挿入し、金型内に導電性樹脂組成物1を入れて、加圧成形することにより得ることができる。

【0061】本発明の方法では、炭化又は黒鉛化工程及び切削工程を経ることなく、炭化温度以下での成形・賦型工程のみで経済的にセパレータを製造できる。更に成形時の金型として、キャビティ側及びコア側のうち少なくとも一方（特にコア側）に連続した凸部（突条）又は溝を形成した金型を用いることにより、溝付きセパレータを低コストでありながら高い精度で得ることができる。

【0062】本発明のセパレータは、燃料電池、特に、固体高分子膜を電解質膜とする固体高分子型燃料電池用セパレータとして有用である。

【0063】

【発明の効果】本発明のセパレータは、炭化・黒鉛化工程及び切削工程を経ることなく、ガス不透過性、電気導電性、熱伝導性、機械強度、耐酸性などの諸特性に優れている。特にフェノール樹脂を用いた場合には、耐熱性、耐酸性、強度、耐熱水性の点で有利である。本発明の方法では、炭化・黒鉛化工程および切削工程を経ることなく、成形・賦型工程により、高い導電性、熱伝導性などの特性に加えて、寸法精度の高い溝（ガス流路）を形成できる。そのため、本発明は、燃料電池用セパレータ（特に固体高分子型燃料電池用セパレータ）に有効に適用できる。

【0064】

【実施例】以下に、実施例に基づいて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。

【0065】実施例及び比較例において、下記の材料を用いた。

【0066】（1）黒鉛粗粒子

人造黒鉛として、針状コークスを素原料とし、温度2800℃で黒鉛化を施した後、粉碎分級することにより、下記の高純度人造黒鉛粉を得た。

【0067】（1a）平均粒径（D50%）110μmの黒鉛粗粒子は、D20%=73μm、D80%=180μmであり、均斉度D80%/D20%=2.5であり、BET比表面積は2m<sup>2</sup>/g、ジブチルフタレート（DBP）を用いた吸油量65cc/100gであった。この黒鉛粗粒子のJIS-R-7222によるブタノール置換真比重は2.24であった。

【0068】（1b）平均粒径（D50%）50μmの黒鉛粗粒子は、D20%=20μm、D80%=90μmであり、均斉度D80%/D20%=4.5であり、BET比表面積は5m<sup>2</sup>/g、ジブチルフタレート（DBP）を用いた吸油量70cc/100gであった。この黒鉛粗粒子のJIS-R-7222によるブタノール置換真比重は2.24であった。

【0069】（2）黒鉛細粒子

（2a）上記黒鉛粗粒子と同様にして、平均粒径（D50%）が25μmの黒鉛細粒子を得た。この黒鉛細粒子は、D20%=10μm、D80%=42μmであり、均斉度D80%/D20%=4.2であり、BET比表面積は8m<sup>2</sup>/g、ジブチルフタレート（DBP）を用いた吸油量80cc/100gであった。この黒鉛粗粒のJIS-R-7222によるブタノール置換真比重は2.24であった。

（2b）MCMBの黒鉛化品（大阪ガス（株）製、「MCM B」：平均粒径20μm）

（2c）薄片状天然黒鉛粒子（（株）エスイーシー製、「SNE-10G」：平均粒径10μm）

【0070】（3）樹脂

（3a）粉末状フェノール樹脂（鐘紡（株）製、「ベルパールS890」：平均粒径20μm）

(3b) ポリフェニレンエーテル樹脂（三菱エンジニアリングプラスチック（株）製、「ユピエースNX-7000N」）

(4) ピッチ系炭素繊維（（株）ドナック製「ドナカーボS」、平均繊維径 $13\mu\text{m}$ 、平均繊維長 $3\text{mm}$ ）

(5) 導電性カーボンブラック（三菱化学（株）製、導電性カーボンブラック、「#3050」：特殊ファエンスブラック、単位粒子径 $0.04\mu\text{m}$ 、DBP吸油量 $175\text{cc}/100\text{g}$ ）

比較例1～4

黒鉛細粒子として、人造黒鉛 $25\mu\text{m}$  (2a)、黒鉛化MCMB $20\mu\text{m}$  (2b)、粉末状フェノール樹脂 (3)、導電性カーボンブラック (5) とを表1に示す割合でミキサーを用い10分間乾式混合した。この粉末混合物を金型に投入し、成形圧力 $50\text{kg}/\text{cm}^2$ 、 $170^\circ\text{C}\times 20$ 分間の条件で成形した。

【0071】実施例1～8

黒鉛粗粒子として、人造黒鉛粒子 $110\mu\text{m}$  (1a)、人造黒鉛粒子 $50\mu\text{m}$  (1b)、黒鉛細粒子として、人造黒鉛 $25\mu\text{m}$  (2a)、黒鉛化MCMB $20\mu\text{m}$  (2b)、薄片状天然黒鉛粗粒子 (2c)、粉末状フェノール樹脂 (3a) とを表1に示す割合でミキサーを用い10分間乾式混合した。この粉末混合物を金型に投入し、成形圧力 $50\text{kg}/\text{cm}^2$ 、 $170^\circ\text{C}\times 20$ 分間の条件でプレス成形した。

【0072】結果を表1に示す。表中数値は重量部を示す。

【0073】

【表1】

表1

比較例	配合				樹脂		物性		
	黒鉛粗粒子		黒鉛細粒子		7L-樹脂 S890	導電性カーボン ブラック	見掛け密度 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	厚み方向の 固有抵抗 ( $\Omega\text{cm}$ )	
	人造黒鉛粗粒子 $110\mu\text{m}$	人造黒鉛粗粒子 $50\mu\text{m}$	人造黒鉛 $25\mu\text{m}$	黒鉛化MCMB $20\mu\text{m}$					
1					50	50	1.38	0.690	
2				580	100		1.87	0.085	
3			320		100		1.90	0.067	
4			500		100		1.91	0.040	
1	600				100		1.84	0.018	
2		600			100		1.88	0.024	
3	480				100	120	1.97	0.014	
4	480			120	100		1.88	0.016	
5	480			60	100	60	1.92	0.017	
6		250		250	100		1.87	0.020	
7	420			180	100		1.88	0.012	
8		500			100	120	1.94	0.020	

【0074】表1から明らかなように、比較例では、良好な成形体を得られたものの、厚み方向の固有抵抗は $0.04\Omega\text{cm}$ 以上であり目的とする低抵抗の成形体は得られなかった。これに対して、実施例では、成形体の表面状態は良好であり、また、厚み方向の固有抵抗も $0.01\sim 0.02\Omega\text{cm}$ という高い導電性を示した。

【0075】実施例9

粉末状フェノール樹脂 (3a) を100重量部、導電性カーボンブラック (5) を100重量部とを予めミキサーを用い10分間乾式混合した。更に、人造黒鉛粗粒子 $110\mu\text{m}$  (1a) を480重量部、黒鉛細粒子として黒鉛化MCMB $20\mu\text{m}$  (2b) を120重量部加え、ミキサーを用い10分間乾式混合した。この粉末混合物を金型に投入し、成形圧力 $50\text{kg}/\text{cm}^2$ 、 $170^\circ\text{C}\times 20$ 分間の条件

17

でプレス成形した。その結果、得られた成形板の見掛け密度は $1.80\text{ g/cm}^3$ 、厚み方向の固有抵抗は $0.039\text{ }\Omega\text{ cm}$ であった。

#### 【0076】実施例10

人造黒鉛粗粒子 $110\text{ }\mu\text{m}$  (1a) を480重量部、黒鉛細粒子として黒鉛化MCMB $20\text{ }\mu\text{m}$  (2b) を120重量部、炭素繊維(4)を10重量部、粉末状フェノール樹脂(3a)を100重量部の割合で秤取り、ミキサーを用い10分間乾式混合した。この粉末混合物を金型に投入し、成形圧力 $50\text{ kg/cm}^2$ 、 $170^\circ\text{C}\times 20$ 分間の条件で

プレス成形した。その結果、得られた成形板の見掛け密度は $1.88\text{ g/cm}^3$ 、厚み方向の固有抵抗は $0.017\text{ }\Omega\text{ cm}$ であった。

【0077】実施例11

ポリフェニレンエーテル樹脂(3b)を100重量部、人造黒鉛粗粒子 $110\text{ }\mu\text{m}$  (1a) を400重量部、黒鉛細粒子として黒鉛化MCMB $20\text{ }\mu\text{m}$  (2b) を100重量部加え、ミキサーを用い10分間乾式混合した。この粉末混合物を押出し成形機に供給し、ペレットを調製した。調製したペレットを用い、射出成形機により平板を射出成形した。その結果、得られた成形板の見掛け密度は1.9

18

$0\text{ g/cm}^3$ 、厚み方向の固有抵抗は $0.014\text{ }\Omega\text{ cm}$ であった。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】図1は本発明の燃料電池用セパレータの一例を示す概略断面図である。

【図2】図2は本発明の燃料電池用セパレータの他の例を示す概略断面図である。

【図3】図3は本発明の燃料電池用セパレータのさらに他の例を示す概略断面図である。

10 【図4】図4は本発明の燃料電池用セパレータの別の例を示す概略断面図である。

【図5】図5は本発明の燃料電池用セパレータのさらに別の例を示す概略断面図である。

【図6】図6は本発明の燃料電池用セパレータの他の例を示す概略断面図である。

#### 【符号の説明】

- 1…成形体
- 2…導電性インサートピン
- 3…導電性金属箔
- 20 4…導電性塗料
- 5…導電性板材

【図1】



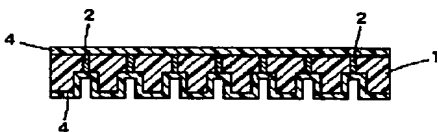
【図2】



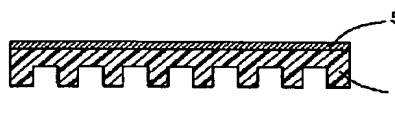
【図3】



【図4】



【図5】



【図6】

